

## О двух видах релаксации поляризации полидоменных сегнетоэлектриков в электрическом поле

© В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Е.С. Иванова, С.В. Нехлюдов

Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук,  
117333 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 20 июля 1998 г.)

На примере кристаллов TGS и  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  исследованы особенности кинетики поляризации и деполяризации полидоменных сегнетоэлектриков с прямоугольной и тонкой "вытянутой" петлей диэлектрического гистерезиса. Показано, что в отличие от первого для второго кристалла локальная свободная энергия асимметрична относительно направления поляризации, нет определенного значения коэрцитивного поля, а в медленной термоактивационной релаксации принимает участие только часть объема кристалла. Во всех случаях медленная релаксация следует универсальному эмпирическому степенному закону. На основе экспериментальных данных построены функции распределения времен релаксации в кристаллах, проведены сравнительные оценки параметров релаксации и энергетических барьеров для доменных стенок.

В результате многолетних исследований релаксационных процессов в диэлектриках были получены обширные сведения об особенностях кинетики поляризации различных поли- и монокристаллических материалов [1]. В последние годы в основном из-за возможных технических применений наибольший интерес вызывают неоднородные системы (смешанные или дефектные кристаллы, пространственно модулированные структуры [2,3], стекла и т. п.), для которых характерны множество долгоживущих метастабильных состояний и как следствие чрезвычайно медленная релаксация к термодинамическому равновесию.

Полидоменные сегнетоэлектрики являются примером таких неоднородных систем и, по-видимому, могут служить модельным объектом для экспериментального исследования общих особенностей медленной кинетики структуры и физических свойств благодаря возможности использования высокочувствительных электрических методов измерения. Медленная релаксация поляризации кристалла триглицинсульфата (TGS) в слабых электрических полях исследовалась нами в [4], где была показана возможность восстановления по экспериментальным данным спектров распределения потенциальных барьеров для доменных стенок по энергиям и выявлена их трансформация при изменении состояния доменной структуры, поверхности и величины поля. Анализ экспериментальных данных проводился в предположении о термоактивационном характере процесса и о независимости центров релаксации (зародышей), а также об их аддитивном вкладе в общую поляризацию. Для кристалла TGS эти предположения представляются вполне естественными, поскольку во время измерений в слабых полях, много меньших коэрцитивного, отсутствовал быстрый процесс переключения поляризации над барьерами. В настоящей работе приводятся результаты регистрации и анализа другого вида медленной релаксации доменной структуры на примере кристалла  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  (RZC), для которого отсутствует определенное значение коэрцитивного поля и существует целый интервал таких

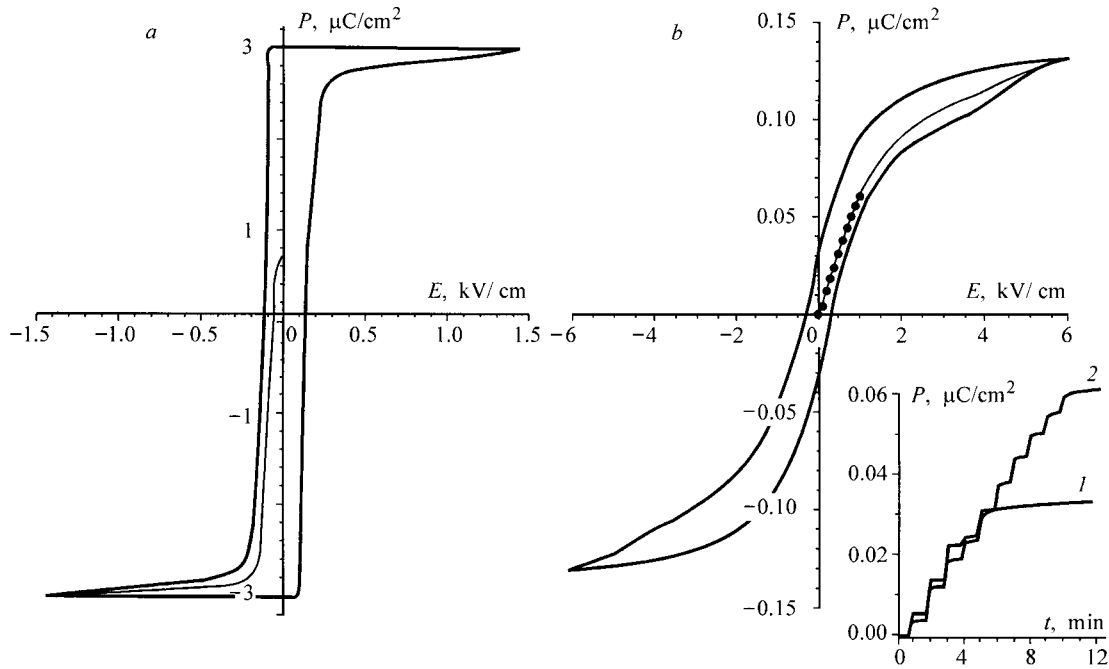
полей, а равновесное значение поляризации зависит от величины поля. Результаты этих исследований сравниваются с данными для кристалла TGS.

### 1. Методика эксперимента

Измерение поляризации кристалла проводилось с помощью равноплечего электрометрического моста, в одно плечо которого включалась эталонная емкость  $C_0$ , во второе — исследуемый кристалл, а в два других — источники постоянных поляризующего кристалл  $V$  и компенсирующего  $v$  напряжений. Нуль-индикатором в диагонали моста служил электрометр В7-29. При балансировке моста с помощью подбора величины  $v$  напряжение на кристалле оказывалось равным  $V$ , а электрический заряд на его электродах  $Q = C_0 v$ . Выбирая определенную величину  $C_0$ , можно задавать необходимую чувствительность схемы  $\Delta Q = C_0 \Delta v$ . Максимальная чувствительность (при  $C_0 = 10 \text{ pF}$ ,  $\Delta v = 1 \text{ mV}$ ) составляла  $\Delta Q = 10^{-8} \text{ } \mu\text{C}$ . Компенсация напряжения в диагонали моста и регистрация данных измерения осуществлялись автоматически с помощью системы, обеспечивающей построение зависимости компенсирующего напряжения  $v$ , а следовательно, и заряда  $Q$  или поляризации  $P = Q/S$  ( $S$  — площадь электродов) от времени на экране персонального компьютера типа IBM PC. Подробное описание устройства и работы системы приводится в [4].

Образцы кристаллов имели форму прямоугольных пластинок размером  $4 \times 5 \times 1 \text{ mm}$ , вырезанных из монокристалла перпендикулярно полярной оси  $Y$ . Большие грани пластины шлифовались и покрывались электропроводящей серебряной пастой. Образцы помещались в криостат, погрешность стабилизации температуры не превышала  $0.01 \text{ K}$ .

Измерения проводились в полярной фазе кристаллов при фиксированных температурах при трех следующих режимах изменения внешнего электрического поля: регистрация поляризации при медленном ступенчатом циклическом изменении поля с периодом  $\sim 1.5$  часа



**Рис. 1.** Квазистатические петли диэлектрического гистерезиса поляризации  $P$  в электрическом поле  $E$  для кристаллов TGS и  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$ .  $a$  — TGS,  $T = 293$  K,  $T_c = 323$  K;  $b$  —  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$ ,  $T = 175$  K,  $T_c = 194.9$  K, на вставке — зависимость  $P$  от времени при ступенчатом изменении  $E$ .

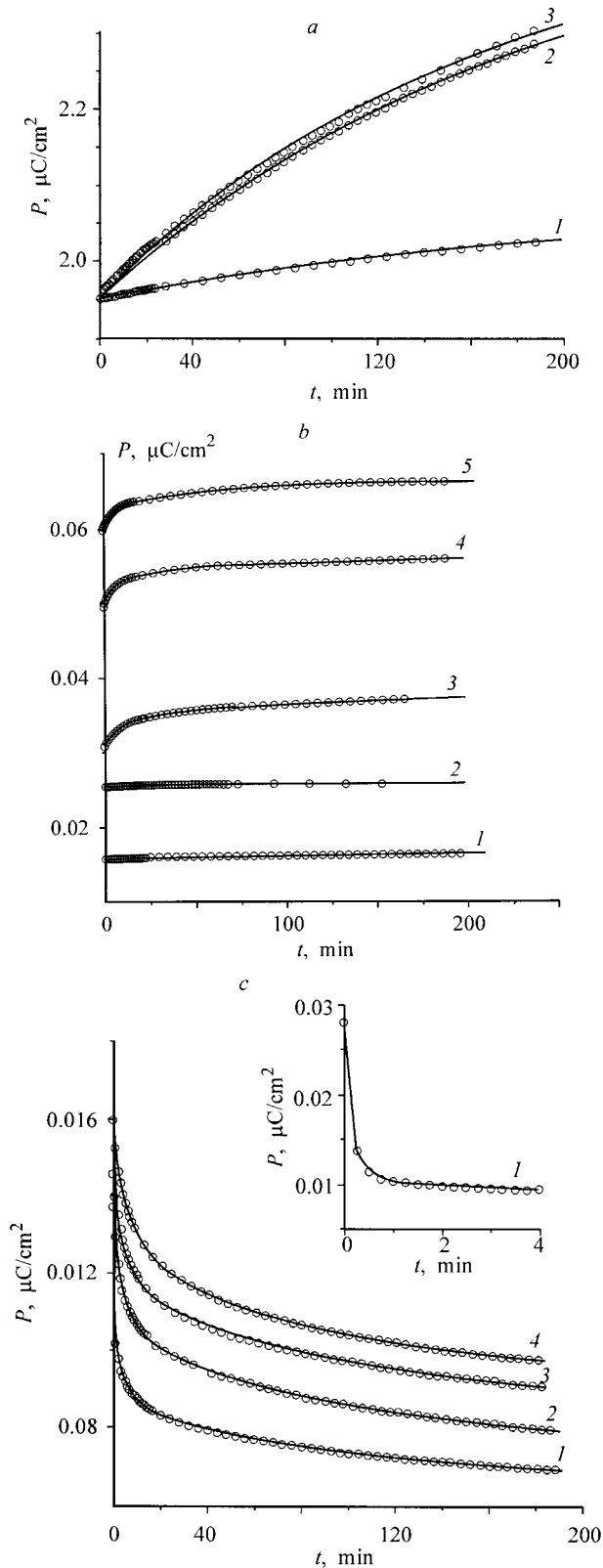
(квазистатические петли диэлектрического гистерезиса), при практически мгновенном включении постоянного поля относительно небольшой амплитуды и при его выключении после непродолжительной ( $\sim 5$  min) предварительной поляризации (деполяризация).

## 2. Результаты и обсуждение

Различие процессов поляризации в кристаллах TGS и RZC явно обнаруживается уже при регистрации петель диэлектрического гистерезиса в периодическом электрическом поле (рис. 1). У первого кристалла петля имеет отчетливо выраженную прямоугольную форму и надежно определяемые значения коэрцитивного поля  $E_c$ , совпадающего с полушириной петли, и спонтанной поляризации  $P_s$ . После уменьшения поля  $E$  до нуля остаточная поляризация почти равна  $P_s$  и долгое время практически не изменяется (время деполяризации велико). У второго кристалла петля имеет вытянутую форму, возможность надежного определения  $P_s$  по изображению петли весьма сомнительна, и при уменьшении  $E$  до нуля сравнительно быстро исчезает остаточная поляризация  $P$  (время деполяризации мало). Петли гистерезиса на рис. 1 проходят через экспериментальные значения  $P$ , полученные при резком ступенчатом изменении поля  $E$  на 20–100 V/cm с интервалом 1 min. За это время заканчивается быстрая стадия релаксации  $P$  и начинается медленный процесс дальнейшего ее изменения. Быстрые стадии у кристаллов также существенно различаются. У

TGS в полях  $E < E_c$  поляризация изменяется плавно, следуя определенному временному закону. У RZC в широком интервале значений полей (как меньших, так и больших полуширины петли на рис. 1,  $b$ )  $P$  сначала изменяется скачком, а затем плавно, и на кривой зависимости  $P$  от времени существует точка излома, свидетельствующая о резком изменении механизма релаксации доменной структуры. Фрагмент такой зависимости от нулевого значения  $P$  до значения при  $E = 0.5$  (кривая 1) и 1 kV/cm (кривая 2) приведен на вставке к рис. 1,  $b$ . Продолжительность быстрой стадии релаксации  $P$  при резком изменении  $E$  не превышает 15 s. Значения  $P$ , соответствующие моментам окончания скачков, находятся на кривой первой четверти периода петли, приведенной на рис. 1,  $b$  (показаны точками).

Особенность начальных стадий поляризации  $P$  для двух кристаллов проявляется также на кривых релаксации в сравнительно большом промежутке времени (рис. 2,  $a, b$ ). После мгновенного включения поля  $E$  в начальный момент времени ( $t = 0$ ) медленной релаксации значения  $P_0$  одинаковы для различных значений  $E < E_c$  у TGS (отсутствуют скачки  $P$ ) и различны у RZC. Скачок  $P$  у RZC тем больше, чем больше  $E$ . Итак, если у TGS быстрые изменения (скачки)  $P$  наблюдаются только в полях  $E \geq E_c$ , то у RZC — в широком интервале значений  $E$ . Естественно связать эту особенность кристалла RZC с существованием у него широкого спектра распределения коэрцитивного поля  $E_c$  по объему образца. В результате в поле практически любой величины часть кристалла поляризуется быстро (надбарьерный процесс), а часть —



**Рис. 2.** Медленная поляризация TGS и Rb<sub>2</sub>ZnCl<sub>4</sub> в различных электрических полях  $E$ . *a* — TGS,  $E = 5.6$  (1), 15 (2), 25 V/cm (3); *b* — Rb<sub>2</sub>ZnCl<sub>4</sub>, процесс поляризации в поле  $E = 200$  (1), 300 (2), 500 (3), 800 (4), 1000 V/cm (5); *c* — Rb<sub>2</sub>ZnCl<sub>4</sub>, процесс деполяризации после выключения поля  $E = 400$  (1), 600 (2), 800 (3), 1000 V/cm (4), на вставке — начальный участок процесса,  $t_0 = 1$  min.

медленно (термоактивный процесс). При необходимости из приведенных экспериментальных данных можно построить спектр распределения  $E_c$ .

Процессы деполяризации кристаллов в принципе должны содержать информацию о спектрах распределения энергетических барьеров для доменных стенок в отсутствие электрического поля. Результаты исследования медленной деполяризации для TGS содержатся в [5], а для RZC приводятся на рис. 2, *c*. Так же как при поляризации кристалла, после выключения поля поляризация  $P$  сначала уменьшается скачком, а затем следует ее медленная релаксация к равновесному нулевому значению (вставка на рис. 2, *c*). Время предварительной поляризации кристалла в различных по величине полях  $E$  до их выключения равнялось 5 min.

Проведем феноменологический анализ медленных стадий поляризации и деполяризации, показанных на рис. 2, так же, как и в [4], считая, что процесс после скачка  $P$  проходит термоактивационно и при малом изменении  $P$  центры релаксации (зародыши) независимы и вносят аддитивный вклад в суммарную величину  $P$ . Тогда

$$y(t) = (P_e - P(t)) / (P_e - P_0) = \int_0^\infty f(\tau) \exp(-t/\tau) d\tau, \quad (1)$$

где  $P_e$  — равновесная поляризация,  $P(t)$  — поляризация в момент времени  $t$ ,  $P_0$  — при  $t = 0$ ,  $f(\tau)$  — функция распределения времен релаксации  $\tau$ ,  $\int_0^\infty f(\tau) d\tau = 1$ .

Если из экспериментальных данных можно определить вид функции  $y(t)$ , то равенство (1) позволяет легко восстановить функцию распределения  $f(\tau)$ , поскольку  $\tau^2 f(\tau)$  и  $y(t)$  связаны преобразованием Лапласа, где первая функция — оригинал, а вторая — ее трансформанта.

В [4] за равновесное значение  $P_e$  для TGS принималась спонтанная поляризация  $P_s$ , что в случае кристалла, имеющего определенное значение коэрцитивного поля  $E_c$ , выглядит вполне оправданным и в рамках теории фазовых переходов Ландау совпадает с общими представлениями о реполяризации сегнетоэлектриков [6]. Однако, если имеется целый спектр распределения  $E_c$ , равновесное значение  $P_e$  будет зависеть от величины поля  $E$ . Самым простым примером этого, по-видимому, являются реальные сегнетоэлектрики, у которых из-за примесей или дефектов, возникающих также в результате ионизирующего излучения [7], существуют внутренние поля смещения  $E_b$ . Эти поля приводят к локальной асимметрии зависящей от поляризации двухминимумной свободной энергии и как следствие к принудительной локальной поляризации. В результате если в некоторых участках кристалла внешнее поле  $E < E_b$ , то они не принимают участия в процессе релаксации. В связи со сказанным выше величина  $P_e$  считалась неизвестным параметром, а поиск аналитического выражения, описывающего экспериментальные данные для обоих кристаллов, проводился для непосредственно измеряемой

поляризации

$$\Delta P(t) = P(t) - P_0 = (P_e - P_0)(1 - y), \quad (2)$$

где  $y$  — функция (1). Так же как в [4], все полученные данные удовлетворительно согласуются со степенной зависимостью

$$y = 1/(1 + t/a)^n, \quad (3)$$

где параметры  $a$  и  $n$  также неизвестны.

Расчетные кривые зависимостей  $P(t)$  на рис. 2 показаны сплошными линиями, а экспериментальные точки с удовлетворительной точностью совпадают с ними. Аппроксимация данных измерения  $P(t)$  зависимостью (3) проводилась методом наименьших квадратов по стандартной программе. Отклонение  $\delta P$  экспериментальных значений  $P$  от расчетных кривых не превышало  $\delta P/P = 0.005$ . Параметры  $P_e$ ,  $a$  и  $n$  для всех случаев выписаны в таблице.

Эмпирический закон (3), возможно, является универсальным для неоднородных систем различного типа. Например, этому же закону следует медленная релаксация диэлектрической проницаемости смешанных кристаллов  $K_{(1-x)}Li_xTaO_3$  в состоянии стекла [8]. При  $n \ll 1$  закон (3) переходит в логарифмический  $y \cong 1 - n \ln(1 + t/a)$ , при  $t \gg a$  — в степенной  $y \cong 1/t^n$ , которые являются частными случаями (3) и регистрировались ранее при многих наблюдениях [1]. По сравнению с известным законом Кольрауша  $y \sim \exp(-t/\tau)^\beta$  ( $\beta < 1$ ) закон (3) лучше соответствует экспериментальным данным при малых  $t$ , поскольку при  $t = 0$  производная  $dy/dt$  для первого бесконечна, а для второго конечна (рис. 2). Кроме того, закону (3) соответствует простая функция распределения [9]

$$f(\tau) = (1/a\Gamma(n))(a/\tau)^{n+1} \exp(-a/\tau), \quad (4)$$

где  $\Gamma(n)$  — гамма-функция. Максимум  $f(\tau)$  находится при  $\tau_m = a/(1 + n)$ . Ошибки  $\delta P_e$ ,  $\delta a$ ,  $\delta n$  определения параметров из экспериментальных данных зависимостей  $P(t)$  нетрудно оценить, пользуясь равенствами (2) и (3)

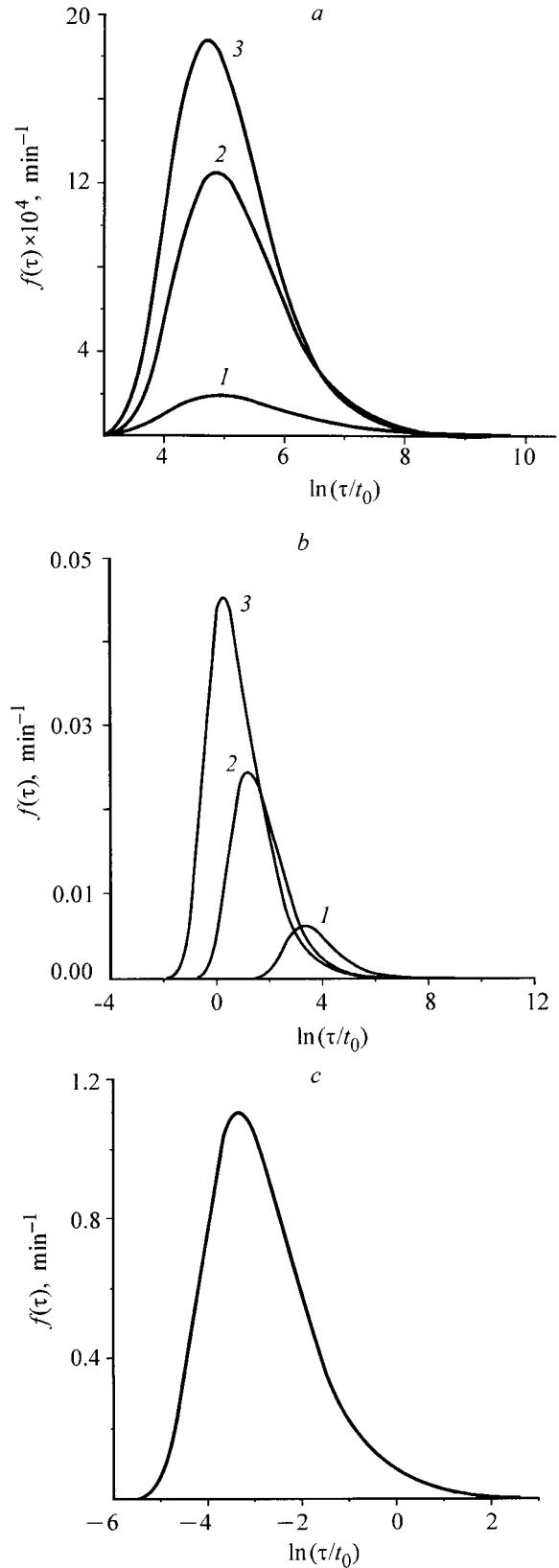
$$\left| \frac{\delta P_e}{(P_e - P_0)} \right| = \left| \frac{\delta P(t)}{P(t) - P_0} \right| = \frac{|\delta P(t)|}{(P_e - P_0)[1 - 1/(1 + t/a)^n]},$$

$$\left| \frac{\delta a}{a} \right| = \frac{(1 + t/a)}{n(t/a)} \left| \frac{\delta P(t)}{P_e - P(t)} \right| = \frac{(1 + t/a)^{n+1} |\delta P(t)|}{n(P_e - P_0)(t/a)},$$

$$\left| \frac{\delta n}{n} \right| = \frac{1}{n \ln(1 + t/a)} \left| \frac{\delta P(t)}{P_e - P(t)} \right| = \frac{(1 + t/a)^n |\delta P(t)|}{n \ln(1 + t/a)(P_e - P_0)},$$

$$\left| \frac{\delta f(\tau)}{f(\tau)} \right| = |n - a/\tau| \left| \frac{\delta a}{a} \right| + n |\ln(a/\tau) - \varphi(n)| \left| \frac{\delta n}{n} \right|, \quad (5)$$

где  $\delta P(t)$  — ошибка измерения  $P$ ,  $\varphi(n) = \Gamma'(n)/\Gamma(n)$  — логарифмическая производная  $\Gamma(n)$ . Существенно, что ошибки зависят от продолжительности регистрации релаксации. При малых временах ( $t \ll a$ ) они чрезвычайно велики и уменьшаются при возрастании  $t$ . При  $t \rightarrow \infty$   $|\delta P_e| \rightarrow |\delta P(t)|$ ,  $\delta a$  и  $\delta n$  сначала уменьшаются, а



**Рис. 3.** Распределение  $f(\tau)$  времени релаксации  $\tau$  для поляризации TGS (a),  $Rb_2ZnCl_4$  (b) и деполяризации  $Rb_2ZnCl_4$  (c) в различных электрических полях  $E$ . a —  $E = 5.6$  (1), 15 (2), 25 V/cm (3); b —  $E = 200$  (1), 500 (2), 800 V/cm (3); c —  $E = 400$  V/cm,  $t_0 = 1$  min.

Параметры спектров распределения времен релаксации  $\tau$  для кристаллов TGS и RZC

Кристалл	Процесс	$E$ , V/cm	$P_e$ , $\mu\text{C}/\text{cm}^2$	$a$ , min	$n$	$\tau_m$ , min	$\tau_1$ , min	$\tau_2$ , min	$\Delta U$ , eV
TGS	Поляризация	5.6	$3.17 \pm 0.17$	$150 \pm 30$	$0.070 \pm 0.011$	$140 \pm 30$	$29 \pm 7$	$3038 \pm 3$	0.1173
		15	$3.02 \pm 0.05$	$210 \pm 10$	$0.55 \pm 0.02$	$135 \pm 9$	$35.0 \pm 2.5$	$1473 \pm 1$	0.0944
		25	$2.84 \pm 0.04$	$200 \pm 10$	$0.76 \pm 0.03$	$116 \pm 8$	$32 \pm 2$	$1046 \pm 2$	0.0879
RZC	Поляризация	200	$0.0176 \pm 0.0002$	$36 \pm 10$	$0.29 \pm 0.04$	$30 \pm 9$	$6.7 \pm 2.2$	$428 \pm 1$	0.0628
		500	$0.0410 \pm 0.0003$	$4.5 \pm 0.8$	$0.26 \pm 0.01$	$3.5 \pm 0.7$	$0.8 \pm 0.2$	$58.3 \pm 0.1$	0.0643
		800	$0.0603 \pm 0.0005$	$1.7 \pm 0.6$	$0.19 \pm 0.01$	$1.4 \pm 0.5$	$0.3 \pm 0.1$	$25.00 \pm 0.05$	0.0658
	Деполяризация	400	0	$0.024 \pm 0.002$	$0.0730 \pm 0.0005$	$0.022 \pm 0.003$	$0.005 \pm 0.003$	$0.4860 \pm 0.0003$	0.07

затем увеличиваются: минимум  $|\delta a/a|_{\min}$  находится при  $t = a/n$ ,  $|\delta a/a|_{\min} = [(n+1)/n]^{n+1} |\delta P(t)/(P_e - P_0)|$ , а минимум  $|\delta n/n|_{\min}$  — при значении  $t^*$ , определяемом из уравнения  $n \ln(1 + t^*/a) = 1 + t^*/a$ .

Спектры  $f(\tau)$  распределения времен  $\tau$  медленных стадий релаксации, рассчитанные по формуле (4), для процессов поляризации TGS, RZC и депполяризации RZC приведены на рис. 3. Характер эволюции спектров для поляризации при изменении величины поля  $E$  для обоих кристаллов одинаков: при увеличении  $E$  максимум  $f(\tau)$  смещается в сторону меньших значений  $\tau$ . Более подробные данные о влиянии поля на спектр  $\tau$  для TGS содержатся в [4]. Спектр  $f(\tau)$  для депполяризации RZC в пределах ошибок измерений  $\delta f(\tau)/f(\tau) \cong 50\text{--}100\%$  практически не зависит от величины поля (200–1000 V/cm) предварительной поляризации кристалла и расположен в области малых значений  $\tau$  с максимумом при  $\tau_m \approx 1.2$  с, а его ширина меньше, чем для процесса поляризации (рис. 3). Для депполяризации TGS, скорость которой существенно меньше, чем в случае RZC, по данным [5] можно получить аналогичную оценку  $\tau'_m \approx 100$  min.

В таблице кроме параметров  $a$ ,  $n$  и  $P_e$  приведены характеристики спектров: минимальные  $\tau_1$  и максимальные  $\tau_2$  значения  $\tau$  и ширина спектров  $\Delta U$ , определенные на уровне  $f(\tau) = 0.1f(\tau_m)$ , где  $f(\tau_m)$  — максимальное значение  $f(\tau)$ . Согласно закону Аррениуса,  $\tau = \tau_0 \exp(U/kT)$  ( $\tau_0$  — кинетический коэффициент), т.е.  $\Delta U = kT \ln(\tau_2/\tau_1)$ . Абсолютная ошибка определения  $\Delta U$  не превышает 0.001 eV. Для других величин ошибки указаны в таблице. В соответствии с (5) точность измерений должна заметно возрастать, если увеличить время регистрации релаксации. Отметим еще раз, что в отличие от [4] при аппроксимации экспериментальных данных для обоих кристаллов степенной зависимостью (3) со свободными параметрами  $a$ ,  $n$  величина  $P_e$  также считалась произвольной (третий свободный параметр). Для TGS это дополнительное предположение фактически ничего нового по сравнению с [4] не дает, поскольку при этом  $P_e$  по-прежнему практически совпадает со спонтанной поляризацией  $P_s$  при всех значениях  $E < E_c$  (см. таблицу). Для RZC, однако, величина  $P_e$  зависит от  $E$ , приблизительно повторяя зависимость  $P$  от  $E$  первой четверти периода изменения поля (рис. 1, b).

Результаты регистрации  $P$ , приведенные выше, позволяют сделать следующие замечания об особенностях зависящей от  $P$  локальной свободной энергии  $F$  для обоих кристаллов (рис. 4).  $F(P)$  для TGS (рис. 4, a) — обычная симметричная двухминимумная функция (кривая 1) [10]. При включении сколь угодно малого поляризирующего поля  $E_p$  функция  $F(P)$  изменяется (кривая 2), и начинается медленная термоактивационная релаксация из состояния  $A$  в  $B$ . При выключении  $E_p$  под действием депполярирующего поля  $E_d$  идет обратный процесс релаксации из состояния  $C$  в  $D$  (кривая 3). Оба процесса показаны на рис. 4, a стрелками. Если  $E_p \cong E_d$  мало, то состояния  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$  близки к состояниям, соответствующим минимумам невозмущенной полем функции  $F(P)$  (кривая 1), и потенциальные барьеры  $U_p = F_A$  при поляризации и  $U_d = F_C$  при депполяризации практически одинаковы,  $U_p \cong U_d$  (индекс у  $F$  — точка на кривой  $F(P)$ , в которой берется значение  $F$ ). Действительно, для энергий барьеров, отвечающих временам  $\tau_m$  и  $\tau'_m$  максимумов распределения  $f(\tau)$  для поляризации и депполяризации соответственно, имеем  $U_p - U_d = kT \ln(\tau_m/\tau'_m)$ . Значения  $\tau_m \sim 100$  (см. таблицу) и  $\tau'_m \sim 100$  (грубая оценка на основании экспериментальных данных [5]), т.е.  $U_p - U_d \sim 0$ . Коэрцитивное поле  $E_c(F_A = 0)$  имеет определенное значение для всего кристалла, так как ширина функции распределения резко уменьшается при  $E \rightarrow E_c$  [4].

Энергия  $F$  для RZC — асимметричная двухминимумная функция. На рис. 4, b приводится схематическое изображение локальной  $F$  для половины образца с нулевой суммарной поляризацией (кривая 1) (для другой половины  $F$  имеет аналогичный вид, но ее более глубокий минимум находится справа при  $P > 0$ ). Поляризирующее поле  $E_p$  изменяет вид  $F$  (кривая 2), и при определенном его пороговом значении, когда  $F_A \geq F_B$ , начинается термоактивационная релаксация из состояния  $A$  в  $B$ . При выключении  $E_p$  происходит депполяризация из состояния  $C$  в  $D$  (кривая 3). Видно, что в отличие от TGS оба процесса существенно различаются: поляризация медленная, а депполяризация относительно быстрая, барьер  $U_p = F_A > U_d = F_C$ . Для энергий барьеров  $U_p$ ,  $U_d$ , отвечающих временам  $\tau_m$  и  $\tau'_m$  максимумов распределения  $f(\tau)$  для поляризации и депполяризации соответственно (см. таблицу и рис. 3),

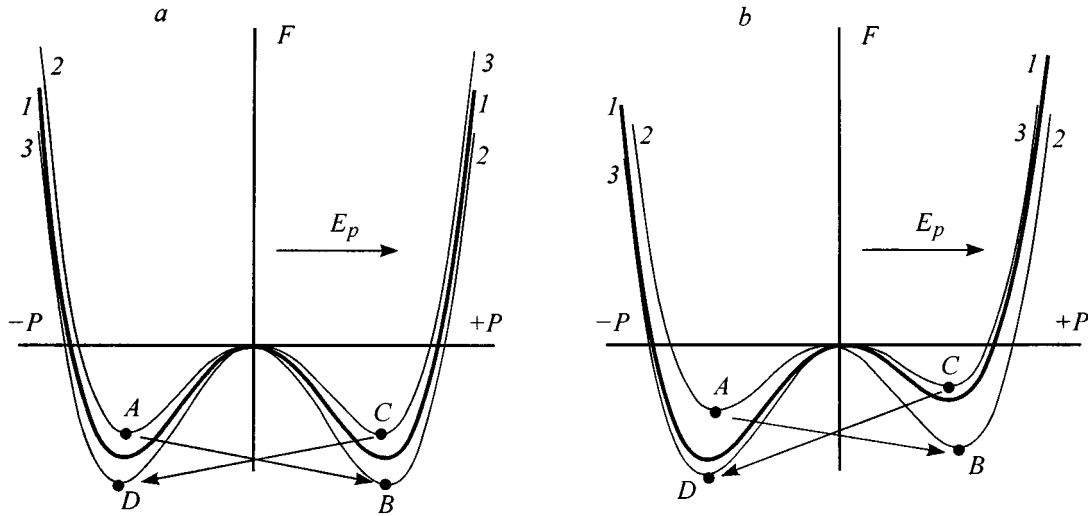


Рис. 4. Схематическое изображение локальных функций свободной энергии  $F(P)$  для TGS (a) и  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  (b).

имеем  $U_p - U_d = kT \ln(\tau_m / \tau'_m) \cong 0.11$  eV. Поскольку в соответствии с экспериментальными данными параметры кривой  $F(P)$  должны иметь некоторое распределение в объеме, значения коэрцитивных полей  $E_c$  в локальных точках кристалла различны, и в процессе надбарьерной поляризации всегда принимает участие только часть объема, в которой выполняется условие  $F_A \geq 0$ . Асимметрия  $F(P)$  для RZC, возможно, связана с появлением из-за неоднородностей кристалла внутренних смещающих полей  $E_b$ , как например в кристаллах TGS, содержащих примеси или подвергнутых ионизирующему облучению [7]. Причина появления  $E_b$  противоположных знаков в "чистом" RZC остается пока неясной. Возможно, что это следствие скопления дефектов в антифазных границах и в плоскостях, занимаемых солитонами в несоизмерной фазе при  $T > T_c$  [2].

В настоящее время известно большое количество различных сегнетоэлектрических материалов, у которых зависимость поляризации от электрического поля (петля диэлектрического гистерезиса) имеет либо прямоугольную, либо "вытянутую" форму. Последняя характерна в первую очередь для неоднородных систем с различного рода макроскопическими неоднородностями, например для так называемых релаксаторов, стекол или керамик. Приведенные в настоящей работе данные регистрации релаксации для процессов поляризации и деполяризации на примере двух кристаллов позволяют связать особенности формы петли, спектры распределения энергетических барьеров для доменных стенок и локальной свободной энергии. В случае прямоугольной петли свободная энергия в любой точке кристалла — обычная симметричная двухминимумная функция, параметры которой имеют некоторое распределение в объеме, коэрцитивное поле имеет определенную величину, медленная термоактивационная релаксация начинается в сколь угодно малом поле и включает все участки кристалла. В случае

"вытянутой" петли свободная энергия — асимметричная относительно поляризации двухминимумная функция, параметры которой распределены в объеме таким образом, что средняя спонтанная поляризация равна нулю, коэрцитивное поле различно в различных участках кристалла, а в релаксации поляризации принимает участие ограниченная часть образца, объем которой увеличивается при возрастании поля. Существенно, однако, что в обоих случаях термоактивационные процессы релаксации подчиняются единому эмпирическому степенному закону, по-видимому являющемуся универсальным для всех неоднородных систем.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 96-02-18456).

## Список литературы

- [1] A.K. Jonscher. Dielectric Relaxation in Solids. Chelsea Dielectric Press Ltd, London (1983). P. 380.
- [2] H.Z. Cummins. Phys. Rep. **185**, 5–6, 211 (1990).
- [3] L.E. Cross. Ferroelectrics **151**, 305 (1994).
- [4] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, С.В. Нехлюдов, Е.С. Иванова. ФТТ **39**, 11, 2046 (1997).
- [5] W. Osak, K. Tkacz-Smiech. Appl. Phys. **A65**, 439 (1997).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лившиц. Электродинамика сплошных сред. Наука, М. (1982). С. 620.
- [7] М. Лайнс, А. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. Мир, М. (1981). С. 736.
- [8] F. Alberici, P. Doussineau, A. Levelut. J. Phys. I France **7**, 2, 329 (1997).
- [9] В.И. Диткин, А.П. Прудников. Справочник по операционному исчислению. Высш. шк., М. (1965). С. 467.
- [10] Б.А. Струков, А.П. Леванюк. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах. Наука, М. (1995). С. 301.